

## 明細書

## 鉄基希土類系ナノコンポジット磁石およびその製造方法

## 技術分野

[0001] 本発明は、鉄基希土類系ナノコンポジット磁石およびその製造方法に関する。また、本発明は、鉄基希土類系ナノコンポジット磁石のための急冷凝固合金、鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の粉末を含むボンド磁石にも関している。

## 背景技術

[0002] 現在、 $_{2}^{Nd}Fe_{14}B$ 相などの硬磁性相(以下、「2-14-1相」と称する場合がある。)と、鉄基硼化物や $\alpha$ -Feなどの軟磁性相とが磁気的に結合した組織構造を有するナノコンポジット型永久磁石が開発されている。「2-14-1相」におけるNdは、他の希土類元素に置換されても良く、また、Feの一部はCoおよび/またはNiによつて置換されても良い。更には、2-14-1相のBの一部はC(炭素)によって置換されても良い。

[0003] 本出願人は、特定組成を有する合金にTiを添加することにより、その合金溶湯の冷却過程で $\alpha$ -Fe相の析出・成長を抑制し、2-14-1相の結晶成長を優先的に進行させることを見出した。そして、本出願人は、添加したTiの効果として微細な鉄基硼化物相や $\alpha$ -Fe相中に2-14-1相が均一に分散した組織を有するナノコンポジット磁石の構成と製造方法を特許文献1に開示している。

[0004] 特許文献1に記載の軟磁性相として鉄基硼化物を主体とするTi含有ナノコンポジット磁石の保磁力は、約500kA/m~1000kA/mとナノコンポジット磁石としては非常に高いが、残留磁束密度は高くて0.9T程度である。

[0005] 昨今、小型モータ、センサといった電子工業製品の分野において、特許文献1に記載の磁石よりも残留磁束密度の高い磁石が要求されている。残留磁束密度を上げるには、2-14-1相やFe-B相より飽和残留磁束密度の高い $\alpha$ -Fe相の存在比率を大きくすることが考えられる。

[0006] 特許文献2や特許文献3は、 $\alpha$ -Fe主体の希土類系ナノコンポジット磁石を開示している。このようなタイプのナノコンポジット磁石によれば、0.9T以上の高い残留磁

束密度が期待できる。

特許文献1:特許3264664号公報

特許文献2:特開平8-162312号公報

特許文献3:特開平10-53844号公報

### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

[0007] 特許文献2および特許文献3に記載されている従来の $\alpha$ -Fe系ナノコンポジット磁石では、その保磁力が400kA/m以下と低いため、実用に供することができないという問題がある。

[0008] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであり、その目的とするところは、保磁力400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を有する鉄基希土類系ナノコンポジット磁石を提供することにある。

[0009] 本発明の他の目的は、上記鉄基希土類系ナノコンポジット磁石のための急冷凝固合金や、上記鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の粉末などを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明の鉄基希土類ナノコンポジット磁石は、組成式 $T_{100-x-y-z-n}^{x} Q_{x} R_{y} Ti_{z} M_{n}$ (TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率x、y、zおよびnが、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 原子%、 $7 \leq y \leq 10$ 原子%、 $0.1 \leq z \leq 5$ 原子%、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%を満足する組成を有し、磁気的に結合したナノコンポジット磁石構造を形成する $R_{2}Fe_{14}B$ 型化合物相および $\alpha$ -Fe相を含有し、前記 $R_{2}Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径は20nm以上であり、前記 $\alpha$ -Fe相は前記 $R_{2}Fe_{14}B$ 型化合物相の厚さ20nm以下の粒界領域に存在し保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を有する。

[0011] 好ましい実施形態において、前記 $R_{2}Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径は30nm以

上300nm以下、前記 $\alpha$ -Fe相の平均結晶粒径は1nm以上20nm以下である。

[0012] 好ましい実施形態において、前記 $\alpha$ -Fe相の平均結晶粒径に対する $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径の比率が2.0以上である。

[0013] 好ましい実施形態において、前記 $\alpha$ -Fe相は、前記 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の粒界三重点に位置している。

[0014] 好ましい実施形態において、前記 $\alpha$ -Fe相の体積比率は全体の5%以上である。

[0015] 本発明の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金は、組成式 $T_{100-x-y-z-n}Q_xR_yTi_zM_n$  ( $T$ はFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、 $Q$ はBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、 $R$ はLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、 $M$ は、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $n$ が、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 原子%、 $7 \leq y \leq 10$ 原子%、 $0.1 \leq z \leq 5$ 原子%、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%を満足する組成を有し、平均厚さが $50 \mu m$ 以上 $300 \mu m$ 以下、平均結晶粒径80nm以下の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を20体積%以上含む。

[0016] 好ましい実施形態において、厚さの標準偏差 $\sigma$ が $5 \mu m$ 以下である。

[0017] 好ましい実施形態において、結晶化層を少なくとも自由冷却側表面に有している。

[0018] 本発明のボンド磁石は、上記の鉄基希土類ナノコンポジット磁石の粉末を含む。

[0019] 本発明の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の製造方法は、組成式 $T_{100-x-y-z-n}Q_xR_yTi_zM_n$  ( $T$ はFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、 $Q$ はBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、 $R$ はLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、 $M$ は、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $n$ が、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 原子%、 $7 \leq y \leq 10$ 原子%、 $0.1 \leq z \leq 5$ 原子%、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%を満足する組成を有している合金の溶湯を用意する工程と、前記合金の溶湯を冷却して凝固させ、平均結晶粒径が80nm以下の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を20体積%以上含む急冷凝固合金を作製する急冷工程と、前記急冷凝固合金

を加熱することにより、磁気的に結合したナノコンポジット磁石構造を形成する $R_2Fe_{14}$  B型化合物相および $\alpha-Fe$ 相を含有し、前記 $R_2Fe_{14}$  B型化合物相の平均結晶粒径は20nm以上であり、前記 $\alpha-Fe$ 相は前記 $R_2Fe_{14}$  B型化合物相の厚さ20nm以下の粒界領域に存在し、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を有する鉄基希土類ナノコンポジット磁石を作製する工程とを含む。

- [0020] 好ましい実施形態において、前記 $R_2Fe_{14}$  B型化合物相の平均結晶粒径は30nm以上300nm以下、前記 $\alpha-Fe$ 相の平均結晶粒径は1nm以上20nm以下である。
- [0021] 好ましい実施形態において、前記急冷工程は、前記合金の溶湯を冷却して凝固させ、平均厚さ $50\mu m$ 以上 $300\mu m$ 以下、厚さの標準偏差 $\sigma$ が $5\mu m$ 以下の急冷凝固合金を形成する。
- [0022] 本発明の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石粉末の製造方法は、上記いずれかの鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金を用意する工程と、前記急冷凝固合金を粉碎して、磁石粉末を作製する工程とを包含する。
- [0023] 好ましい実施形態において、前記急冷凝固合金の粉碎前または粉碎後に、前記急冷凝固合金を加熱することにより、平均結晶粒径が30nm以上300nm以下の $R_2Fe_{14}$  B型化合物相、および平均結晶粒径は1nm以上20nm以下の $\alpha-Fe$ 相を含有し、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を発現させる。

### 発明の効果

- [0024] 本発明によれば、Ti添加の効果により、 $\alpha-Fe$ の析出・成長を抑制しつつ、従来よりも低い溶湯急冷速度で合金溶湯を急冷する。このため、急冷直後における急冷凝固合金の全体をアモルファス化することなく、平均結晶粒径80nm以下の微細な $R_2Fe_{14}$  B型化合物相を20体積%以上含む急冷凝固合金を得ることができる。このような急冷凝固合金を加熱し結晶化させても、Tiの働きにより、 $\alpha-Fe$ の粗大化を抑制し、 $R_2Fe_{14}$  B型化合物相を優先的に成長させることができる。最終的に、 $\alpha-Fe$ は、 $R_2Fe_{14}$  B型化合物相の粒界(典型的には粒界三重点)に析出するが、その平均結晶粒径は1nm以上20nm以下であり、平均結晶粒径が30nm以上300nm以下の $R_2Fe_{14}$  B型化合物相に比べて格段に小さい。この結果、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を発現することが可能になる。

### 図面の簡単な説明

[0025] [図1](a)～(d)は、ナノコンポジット磁石の組織構成を模式的に示す図である。  
 [図2](a)(b)は、急冷装置(メルトスピニング装置)を示す図である。  
 [図3]本願発明の実施例における組織構造を示す断面TEM(透過型電子顕微鏡)写真である。

### 符号の説明

[0026] 1b、2b、8b、および9b 雰囲気ガス供給口  
 1a、2a、8a、および9a ガス排気口  
 1 溶解室  
 2 急冷室  
 3 溶解炉  
 4 貯湯容器  
 5 出湯ノズル  
 6 ロート  
 7 回転冷却ロール  
 21 溶湯

### 発明を実施するための最良の形態

[0027] 本発明では、まず、組成式  $T_{100-x-y-z-n}^{ } Q_x R_y Ti_z M_n$  で表現される合金の溶湯を形成する。ここで、TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素である。また、上記組成式中の組成比率x、y、zおよびnは、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 原子%、 $7 \leq y \leq 10$ 原子%、 $0.1 \leq z \leq 5$ 原子%、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%を満足している。

[0028] 次に、上記組成を有する合金の溶湯を冷却して凝固させ、平均結晶粒径が80nm以下の  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相を20体積%以上含む急冷凝固合金を作製する(急冷工程)。

[0029] 従来の  $\alpha$  - Fe /  $R_2Fe_{14}B$  系ナノコンポジット磁石では、合金溶湯を可能な限り高い急冷速度で冷却し、略アモルファスの急冷凝固合金を形成していたが、本発明では比較的低い急冷速度で合金溶湯を冷却し、平均結晶粒径が 80nm 以下の  $R_2Fe_{14}B$  型化合物相を 20 体積 % 以上含む急冷凝固合金を形成している。Ti を添加することなく、急冷速度を低下させると、 $R_2Fe_{14}B$  型化合物相よりも  $\alpha$  - Fe が優先的に析出しこれが成長するため、急冷凝固合金では、平均結晶粒径が  $R_2Fe_{14}B$  型化合物相よりも大きな  $\alpha$  - Fe 相が支配的となり、 $R_2Fe_{14}B$  型化合物相よりも体積比率で  $\alpha$  - Fe 相が多く含まれることになる。また、 $\alpha$  - Fe 相のサイズが急冷速度によって大きく変動するため、磁石特性に優れたナノコンポジット磁石を再現性良く得るために、アモルファスの急冷凝固合金を作製した後、熱処理の条件を制御することによって、良好な硬磁気特性が得られる所望の組織を形成する試みが行われてきた。

[0030] これに対し、本発明では、急冷直後に完全にアモルファス化した急冷凝固合金を作製するのではなく、平均結晶粒径が 80nm 以下の  $R_2Fe_{14}B$  型化合物相を 20 体積 % 以上含む急冷凝固合金を作製している。 $\alpha$  - Fe の析出・成長は Ti 添加の効果により抑制されており、急冷凝固合金中に含まれる  $\alpha$  - Fe 相の体積比率は  $R_2Fe_{14}B$  型化合物相の体積比率よりも小さい。

[0031] 好ましい実施形態では、急冷凝固合金の厚さの標準偏差  $\sigma$  を  $5 \mu m$  以下にし、厚さの変動の少ない急冷合金を得ることにより、 $R_2Fe_{14}B$  型化合物相とアモルファス相とが均一に混在する微細金属組織が得られる。冷却ロールによって合金溶湯を急冷する場合、冷却ロールによる急冷速度は、形成される急冷凝固合金の厚さに応じて変化する。均一なナノコンポジット磁石組織を形成するためには、急冷直後における急冷凝固合金の急冷速度を均一化する必要があり、そのためには、急冷直後における急冷凝固合金の厚さの標準偏差  $\sigma$  を  $5 \mu m$  以下にするように急冷条件を整える必要がある。このような急冷を行うためには、メルトスピニング法や特開 2004-122230 号公報に記載の管状孔を有するタンディッシュを用いる溶湯急冷法を好適に用いることができる。これらの急冷法を実行する際、冷却ロールとして表面が平滑なものを使用し、またロールへの雰囲気ガスの巻き込みを抑制するため、減圧雰囲気で急冷工程を行うことが好ましい。

[0032] こうして得た急冷凝固合金に対しては、その後に熱処理を行うことにより、急冷凝固合金中のアモルファス相を結晶化し、最終的に高い磁気特性を有するナノコンポジット磁石を得ることができる。本発明では、急冷凝固合金を加熱することにより、平均結晶粒径が30nm以上300nm以下の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相と、平均結晶粒径が1nm以上20nm以下の $\alpha$ -Fe相とを含有するナノコンポジット磁石組織を完成する(熱処理工程)。こうして、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を発現する鉄基希土類系ナノコンポジット磁石を得ることができる。

[0033] このように本発明の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石では、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径が $\alpha$ -Fe相の平均結晶粒径より大きく、好ましい実施形態では、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の粒界三重点に微細な $\alpha$ -Fe相が存在している。

[0034] 以下、図1を参照しながら、本発明のナノコンポジット磁石と、従来のナノコンポジット磁石との間に存在する組織構造の相違点を説明する。

[0035] 図1(a)～(d)の左側に位置する矩形領域は、それぞれ、急冷凝固合金の微細組織構造を模式的に示しており、右側に位置する矩形領域は、それぞれ、加熱処理後のナノコンポジット磁石における微細組織構造を示している。

[0036] 図1(a)～(d)は、それぞれ、本発明によるナノコンポジット磁石、従来の $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石、従来の $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石にTiを添加したもの、Tiを添加した鉄基硼化物/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石を示している。

[0037] 本発明では、図1(a)に示されるように、急冷凝固合金中には明確な $\alpha$ -Feの存在は観察されず、微細な $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相がアモルファス中に分散した組織が得られる。この段階で、微細な $\alpha$ -Feが形成されていてもよい。なぜならば、Ti添加の効果により、その後の熱処理の過程で $\alpha$ -Fe相の成長速度が抑制され、加熱処理後は、優先的に成長した $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の粒界三重点に微細な $\alpha$ -Fe相(図中、黒い部分)が存在する組織が得られるからである。

[0038] 従来の $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石では、図1(b)に示されるように、急冷凝固合金は略完全なアモルファス状態にある。加熱処理後は、略同じ大きさの $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相および $\alpha$ -Fe相が混在する組織が得られる。

[0039] 従来、図1(b)に示すナノコンポジット磁石の組織を微細化する目的で、原料合金の溶湯にTiなどの金属元素を添加することが報告されている。このような金属元素を添加する場合、加熱処理の条件を制御することにより、図1(c)に示されるように、 $\alpha$ -Fe相(図中、黒い部分)および $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相(図中、白い部分)の両方が微細化された組織が作製される。

[0040] 上記の $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石ではなく、Tiを添加した鉄基硼化物/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石では、図1(d)に示されるように、急冷凝固合金中に $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相が形成されるが、最終的に得られる組織は、個々の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の周囲を薄い鉄基硼化物(Fe-B)相が覆った構成を有している。

[0041] 従来、 $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石では、 $\alpha$ -Fe相を $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相に比べて選択的に小さくすることができず、公知の $\alpha$ -Fe/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石では、 $\alpha$ -Fe相と $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相とは略等しい平均結晶粒径を有していた。また、ナノコンポジット磁石の特性を向上させるためには、 $\alpha$ -Fe相を微細化する必要があったため、合金用途の急冷条件や結晶化熱処理条件を制御することにより、 $\alpha$ -Fe相(図中、黒い部分)および $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相(図中、白い部分)の両方を均一に微細化したナノコンポジット磁石が報告されていた(図1(c))。

[0042] これらのナノコンポジット磁石に対し、本発明のナノコンポジット磁石は、相対的に大きな $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の粒界に微小な $\alpha$ -Fe相を離散的に分散させた特異な組織構造を有しており、それによって、優れたナノコンポジット磁石特性を得ることが可能になった。このような組織構造が実現できた理由は、合金にTiを添加するだけでなく、急冷直後の急冷凝固合金中に意図的に微細な $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を分散させたためである。この結果、優先的に $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相が成長し、各 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相が充分に成長した後、粒界三重点に微細な $\alpha$ -Fe相が析出するものと考えられる。

[0043] なお、図1(d)に示す鉄基硼化物/ $R_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石では、鉄基硼化物(Fe-B)相がフィルム状に存在しているのに対し、本発明では、図1(a)に示すように、粒界三重点に微細な $\alpha$ -Fe相が分散している理由は不明である。

[0044] 以下、本発明による鉄基希土類系ナノコンポジット磁石を製造する方法の好ましい

実施形態を説明する。

[0045] まず、図2を参照しながら、本実施形態で使用する急冷装置の構成を説明する。

[0046] [急冷装置]

本実施形態では、例えば、図2に示す急冷装置を用いて原料合金を製造する。酸化しやすい希土類元素RやFeを含む原料合金の酸化を防ぐため、不活性ガス雰囲気中で合金製造工程を実行する。不活性ガスとしては、ヘリウムまたはアルゴン等の希ガスや窒素を用いることができる。

[0047] 図2の装置は、真空または不活性ガス雰囲気を保持し、その圧力を調整することができる原料合金の溶解室1および急冷室2を備えている。図2(a)は全体構成図であり、図2(b)は、一部の拡大図である。

[0048] 図2(a)に示されるように、溶解室1は、所望の磁石合金組成になるように配合された原料20を高温にて溶解する溶解炉3と、底部に出湯ノズル5を有する貯湯容器4と、大気の進入を抑制しつつ配合原料を溶解炉3内に供給するための配合原料供給装置8とを備えている。貯湯容器4は原料合金の溶湯21を貯え、その出湯温度を所定のレベルに維持できる加熱装置(不図示)を有している。

[0049] 急冷室2は、出湯ノズル5から出た溶湯21を急冷凝固するための回転冷却ロール7を備えている。

[0050] この装置においては、溶解室1および急冷室2内の雰囲気およびその圧力が所定の範囲に制御される。そのために、雰囲気ガス供給口1b、2b、および8bとガス排気口1a、2a、および8aとが装置の適切な箇所に設けられている。特にガス排気口2aは、急冷室2内の絶対圧を30kPa～常圧(大気圧)の範囲内に制御するため、ポンプに接続されている。

[0051] 溶解炉3は傾動可能であり、ロート6を介して溶湯21を貯湯容器4内に適宜注ぎ込む。溶湯21は貯湯容器4内において不図示の加熱装置によって加熱される。

[0052] 貯湯容器4の出湯ノズル5は、溶解室1と急冷室2との隔壁に配置され、貯湯容器4内の溶湯21を下方に位置する冷却ロール7の表面に流下させる。出湯ノズル5のオリフィス径は、例えば0.5～2.0mmである。溶湯21の粘性が大きい場合、溶湯21は出湯ノズル5内を流れにくくなるが、本実施形態では急冷室2を溶解室1よりも低い

圧力状態に保持するため、溶解室1と急冷室2との間に圧力差が形成され、溶湯21の出湯がスムーズに実行される。

[0053] 冷却ロール7は、熱伝導度の点からAl合金、銅合金、炭素鋼、真鍮、W、Mo、青銅から形成され得る。ただし、機械的強度および経済性の観点から、Cu、Fe、またはCuやFeを含む合金から形成することが好ましい。CuやFe以外の材料で冷却ロールを作製すると、急冷合金の冷却ロールに対する剥離性が悪くなるため、急冷合金がロールに巻き付くおそれがあり好ましくない。冷却ロール7の直径は例えば300～500mmである。冷却ロール7内に設けた水冷装置の水冷能力は、単位時間あたりの凝固潜熱と出湯量とに応じて算出し、調節される。

[0054] 図2に示す装置によれば、例えば合計10kgの原料合金を10～20分間で急冷凝固させることができる。こうして形成した急冷合金は、例えば、厚さ:10～300μm、幅:2mm～3mmの合金薄帯(合金リボン)22となる。

[0055] [急冷方法]  
まず、以下の組成式で表現される原料合金の溶湯21を作製し、図2の溶解室1の貯湯容器4に貯える。

[0056] 合金組成:組成式 $T_{100-x-y-z-n}^{x} Q_{x} R_{y} Ti_{z} M_{n}$ で表現され、組成比率x、y、zおよびnが、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 原子%、 $7 \leq y \leq 10$ 原子%、 $0.1 \leq z \leq 5$ 原子%、 $0 \leq n \leq 10$ 原子%を満足する。なお、TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素である。

[0057] 次に、この溶湯21は出湯ノズル5から減圧Ar雰囲気中の冷却ロール7上に出湯され、冷却ロール7との接触によって急冷され、凝固する。急冷凝固方法としては、冷却速度を高精度に制御できる方法を用いる必要がある。

[0058] 本実施形態の場合、溶湯21の冷却凝固に際して、冷却速度を $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ °C/秒とすることが好ましく、 $3 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ °C/秒とすることがより好ましく、 $1 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6$ °C/秒とすることが更に好ましい。

[0059] 合金の溶湯21が冷却ロール7によって冷却される時間は、回転する冷却ロール7の外周表面に合金が接触してから離れるまでの時間に相当し、その間に、合金の温度は低下し、過冷却液体状態になる。その後、過冷却状態の合金は冷却ロール7から離れ、不活性雰囲気中を飛行する。合金は薄帯状で飛行している間に雰囲気ガスに熱を奪われる結果、その温度は更に低下する。本発明では、雰囲気ガスによる抜熱効果が強まり、合金中に $Nd_{2}Fe_{14}B$ 型化合物を均一微細に析出・成長させることができる。なお、適切な量のTiを原料合金中に添加していない場合には、上述したような冷却過程を経た急冷合金中には、 $\alpha$ -Feが優先的に析出・成長するため、最終的に得られる磁石中の $\alpha$ -Feが粗大化してしまうため、磁石特性が劣化してしまうことになる。

[0060] 本実施形態では、ロール表面速度を10m／秒以上30m／秒以下(好ましくは14～25m／秒、さらに好ましくは18～22m／秒)の範囲内に調節し、かつ、雰囲気ガスによる二次冷却効果を高めるために雰囲気ガス圧力を30kPa以上にすることによって、平均粒径80nm以下の微細な $R_{2}Fe_{14}B$ 型化合物相を20体積%以上含む急冷合金を作製している。このような結晶層は、急冷凝固合金薄帯の自由冷却面側に略均一に形成され、結晶化した層を形成する。また、急冷凝固合金薄帯の冷却ロール側における極表層にも薄い結晶化層が形成され得る。これらの結晶化層に挟まれた中間領域は、アモルファスまたはアモルファスに近い状態にある。

[0061] [熱処理]

本実施形態では、熱処理をアルゴン雰囲気中で実行する。好ましくは、昇温速度を5°C／秒～20°C／秒として、550°C以上850°C以下の温度で30秒以上20分以下の時間保持した後、室温まで冷却する。この熱処理によって、アモルファス相中に準安定相の微細結晶が析出・成長し、ナノコンポジット組織構造が形成される。本発明によれば、熱処理の開始時点で既に微細な $Nd_{2}Fe_{14}B$ 型結晶相が全体の20体積%以上存在しているため、 $\alpha$ -Fe相や他の結晶相の粗大化が抑制され、 $Nd_{2}Fe_{14}B$ 型結晶相以外の各構成相(軟磁性相)が均一に微細化される。熱処理後に得られるナノコンポジット磁石は、 $Nd_{2}Fe_{14}B$ 型結晶相の粒界に主として $\alpha$ -Feが存在する組織構

造を有している。 $\alpha$  - Feの存在比率は、全体の5体積%以上であると考えられ、磁石全体の残留磁束密度が向上する。

[0062] なお、熱処理温度が550°Cを下回ると、熱処理後もアモルファス相が多く残存し、急冷条件によっては、保磁力が充分なレベルに達しない場合がある。また、熱処理温度が850°Cを超えると、各構成相の粒成長が著しく、残留磁束密度B<sub>r</sub>が低下し、減磁曲線の角形性が劣化する。このため、熱処理温度は550°C以上850°C以下が好ましいが、より好ましい熱処理温度の範囲は570°C以上820°C以下である。

[0063] 热処理雰囲気は、合金の酸化を防止するため、不活性ガス雰囲気が好ましい。0.1kPa以下の真空中で熱処理を行っても良い。

[0064] 热処理前の急冷合金中には、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物相およびアモルファス相以外に、Fe<sub>3</sub>B相、Fe<sub>23</sub><sub>6</sub>、およびR<sub>2</sub>Fe<sub>23</sub><sub>3</sub>B相等の準安定相が含まれていても良い。その場合、熱処理によって、R<sub>2</sub>Fe<sub>23</sub><sub>3</sub>B相は消失し、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相の飽和磁化と同等、または、それよりも高い飽和磁化を示す鉄基硼化物(例えばFe<sub>23</sub><sub>6</sub>B)や $\alpha$  - Feを結晶成長させることができる。

[0065] 热処理後におけるR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物相の平均結晶粒径は、単磁区結晶粒径である300nm以下となる必要があり、保磁力と減磁曲線の角形性を向上させるという観点から30nm以上150nm以下であることが好ましく、30nm以上100nm以下であることが更に好ましい。これに対し、 $\alpha$  - Fe相の平均結晶粒径が20nmを超えると、各構成相間に働く交換相互作用が弱まると共に、単磁区ではなく多磁区構造をもつ $\alpha$  - Fe粒子が増すことから、減磁曲線の角形性および磁化が低下するため、B<sub>r</sub>、(BH)<sub>max</sub>が劣化してしまう。これらの平均結晶粒径が1nmを下回ると、高い保磁力を得られなくなる。以上のことから、 $\alpha$  - Fe相平均結晶粒径は1nm以上20nm以下であることが好ましい。

[0066] このように発明では、R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物相の平均結晶粒径は $\alpha$  - Fe相の平均結晶粒径よりも大きく、後者に対する前者の比率は1.5以上である。この比率は、2.0以上であることが好ましい。

[0067] なお、熱処理前に急冷合金の薄帯を粗く切断または粉碎しておいてもよい。熱処理後、得られた磁石を微粉碎し、磁石粉末(磁粉)を作製すれば、その磁粉から公知

の工程によって種々のボンド磁石を製造することができる。ボンド磁石を作製する場合、鉄基希土類合金磁粉はエポキシ樹脂やナイロン樹脂と混合され、所望の形状に成形される。このとき、ナノコンポジット磁粉に他の種類の磁粉、例えばSm-Fe-N系磁粉やハードフェライト磁粉を混合してもよい。

[0068] [組成の限定理由]

前述のように、本発明による鉄基希土類ナノコンポジット磁石の組成は、 $T_{100-x-y-z-n}^{Q}$   
 $R_x^{y} Ti_z^{n} M^{n}$  の式で表される。ここで、TはFeまたは、CoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素とFeとを含む遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素である。また、組成比率x、y、zおよびnは、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$  原子%、 $7 \leq y \leq 10$  原子% (好ましくは $8 \leq y \leq 10$  原子%)、 $0.1 \leq z \leq 5$  原子% (好ましくは $0.5 \leq z \leq 4$  原子%)、 $0 \leq n \leq 10$  原子%の関係を満足している。

[0069] Qは、その全量がB(硼素)から構成されるか、または、BおよびC(炭素)の組み合せから構成される。Qの総量に対するCの原子比率割合は0.5以下であることが好ましい。

[0070] Tiを添加しない場合、Qの組成比率xが7原子%未満になると、アモルファス生成能が大きく低下する為、均一な微細金属組織とならず、0.9T以上の残留磁束密度Brが得られない。本発明では、Ti添加によりアモルファス生成能が向上するため、Qの組成比率xの下限は5原子%である。一方、Qの組成比率xが10原子%を超えると、構成相中で最も高い飽和磁化を有する $\alpha$ -Feの存在比率が減少し、その代わりに軟磁性相として $Fe_3B$ 、 $Fe_{3.5}B$ 、 $Fe_{23}B_6$ が析出し、0.9T以上の残留磁束密度Bが得られなくなる。このため、Qの組成比率xは5原子%以上10原子%以下となるように設定することが好ましい。より好ましい組成比率xの範囲は5.5原子%以上9.5原子%以下であり、更に好ましい組成比率xの範囲は5.5原子%以上9.0原子%以下である。更に好ましい組成比率xの上限は8原子%である。なお、Bの一部(原子比率で50%まで)を炭素(C)で置換しても磁気特性および金属組織に影響を与えないため許容

される。

[0071] Rは、希土類元素(Yを含む)の群から選択された1種以上の元素である。LaまたはCeが存在すると、保磁力および角形性が劣化するため、LaおよびCeを実質的に含まないことが好ましい。ただし、微量のLaやCe(0.5原子%以下)が不可避的に混入する不純物として存在する場合は、磁気特性上、問題ない。したがって、0.5原子%以下のLaやCeを含有する場合は、LaやCeを実質的に含まないといえる。

[0072] Rは、より具体的には、PrまたはNdを必須元素として含むことが好ましく、その必須元素の一部をDyおよび/またはTbで置換してもよい。Rの組成比率yが全体の7原子%未満になると、保磁力の発現に必要な $R_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物相が充分に析出せず、400kA/m以上の保磁力 $H_c$ を得ることができなくなる。また、Rの組成比率yが10原子%を超えると、強磁性を有する鉄基硼化物や $\alpha$ -Feの存在量が低下する。故に、希土類元素Rの組成比率yは7原子%以上10原子%以下の範囲、例えば、7.5原子%以上9.8原子%以下に調節することが好ましい。より好ましいRの範囲は8原子%以上9.8原子%以下であり、最も好ましいRの範囲は8.2原子%以上9.7原子%以下である。

[0073] Tiは、前述した効果を得るために必須の元素であり、保磁力 $H_c$ および残留磁束密度B<sub>r</sub>の向上および減磁曲線の角形性の改善に寄与し、最大エネルギー積(BH)<sub>max</sub>を向上させる。

[0074] Tiの組成比率zが全体の0.1原子%未満になると、Ti添加の効果が充分に発現しない。一方、Tiの組成比率zが5原子%を超えると、結晶化熱処理後も残存するアモルファス相の体積比率が増すため、残留磁束密度B<sub>r</sub>の低下を招来しやすい。以上のことから、Tiの組成比率zは0.1原子%以上5原子%以下の範囲とすることが好ましい。より好ましいzの範囲の下限は0.5原子%であり、更に好ましいzの範囲の下限は1原子%である。また、より好ましいzの範囲の上限は4原子%である。

[0075] 主としてFeから構成される遷移金属Tは、上述の元素の含有残余を占めるが、Feの一部をCoおよびNiの一種または二種の遷移金属元素で置換しても所望の硬磁気特性を得ることができる。Feに対するCoやNiの置換量が50%を超えると、0.5T以上の高い残留磁束密度B<sub>r</sub>が得られない。このため、置換量は0%以上50%以下

の範囲に限定することが好ましい。なお、Feの一部をCoで置換することによって、減磁曲線の角形性が向上するとともに、 $R_2 Fe_{14} B$ 相のキュリー温度が上昇するため、耐熱性が向上する。また、Coを添加することにより、合金溶湯の急冷時において合金溶湯の粘性が低下するため、安定した液体急冷が維持できるという効果も得られる。CoによるFe置換量の好ましい範囲は0.5%以上15%以下である。

[0076] Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、Pbの1種または2種以上の添加元素Mを加えてもよい。このような元素の添加により、磁気特性が向上する他、最適熱処理温度域を拡大する効果が得られる。ただし、Mの添加量が10原子%を超えると磁化の低下を招くため、Mの組成比率nは0原子%以上10原子%以下の範囲に限定される。Mの組成比率nの好ましい範囲は、0.1原子%以上5原子%以下である。

### 実施例

[0077] (実施例1)

以下の表1に示す組成を有する試料(No. 1～No. 21)の各々について、Nd、Pr、B、C、Ti、Cu、Ga、Co、Zr、V、NbおよびFeの各材料を用いて総量が30グラムとなるように秤量し、底部に0.8mm  $\phi$  のオリフィスを有する透明石英製のノズル内に入れた。

[0078] その後、Ar雰囲気中で高周波加熱によりノズル内の原料を溶解し、得られた合金溶湯の温度が1400°Cに到達した後、ノズル内を30kPaのアルゴンガスで加圧し、ノズル底部のオリフィスより合金溶湯を冷却ロールの表面に噴出させた。

[0079] 冷却ロールは、その外周面の温度が室温程度に維持されるように内部が冷却されながら高速で回転する。このため、オリフィスから噴出した合金溶湯はロール周面に接触して熱を奪われつつ、周速度方向に飛ばされることになる。冷却ロールの周速度Vsは20m/秒に設定した。

[0080] こうして、平均厚さ40～50  $\mu$  mの急冷合金薄帯(幅0.9～2.0mm)を作製した。得られた急冷合金は、粉末XRD(粉末X線回折装置)による調査の結果、アモルファスと、 $Nd_2 Fe_{14} B$ 相および $\alpha$ -Feと推測される結晶相とが混在した急冷合金組織を有していることを確認した。また、得られた急冷合金薄帯の厚みの標準偏差 $\sigma$ は全て5

$\mu\text{m}$ 以下であることを確認した。

[0081] 次いで、得られた合金薄帯を長さ20mm程度に切断した後、Ar雰囲気中、630～700°Cの温度で10分間保持する結晶化熱処理を施した。

[0082] 热処理後の急冷合金薄帯の結晶相を粉末XRDで調査したところ、試料No. 1～2 1は、 $\text{Nd}_{2}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相と $\alpha$ -Fe相(一部の試料には $\text{Fe}_3\text{B}$ 、 $\text{Fe}_{23}\text{B}_6$ といったFe-B相も見られた)からなる金属組織であった。また、透過型電子顕微鏡を用いて微細金属組織を調査したところ、平均結晶粒径30nm～100nmの $\text{Nd}_{2}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相と、各 $\text{Nd}_{2}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶粒の粒界域(厚み:数nm～20nm)、特に粒界三重点付近に平均結晶粒径1nm～20nmの微細な $\alpha$ -Fe相が混在するナノコンポジット磁石構造であることを確認した。図3は、実施例19の試料の断面を示すTEM(透過型電子顕微鏡)写真である。この写真などより、 $\alpha$ -Fe相が全体の5体積%以上存在することが観察される。表2に、振動式磁力計を用いて測定した室温での結晶化熱処理後の急冷合金薄帯の磁気特性を示す。

[0083] なお、急冷工程における冷却ロールの周速度Vsを14～18m/秒の範囲で変化させたときは、厚さが52～74  $\mu\text{m}$ の範囲にある急冷合金薄帯が得られた。このように、冷却ロールの周速度Vsが低下すると、急冷合金薄帯は厚く形成されるが、厚さの標準偏差 $\sigma$ は2.2～4.2の範囲に収まっていることを確認した。

[0084] (比較例)  
表1のNo. 22～No. 30の合金組成になるようNd、B、Nb、Cr、およびFeの各元素を配合した原料30gを、底部に0.8mm  $\phi$ のオリフィスを有する透明石英製のノズル内に入れた。その後、Ar雰囲気中で高周波加熱によりノズル内の原料を溶解し、得られた合金溶湯の温度が1400°Cに到達した後、ノズル内を30kPaで加圧した。こうして、ノズル底部のオリフィスより、合金溶湯を回転ロール表面(Vs=20m/秒)に噴射し、合金溶湯を急冷した。こうして、幅0.9～1.1mmで平均厚さ40～50  $\mu\text{m}$ の急冷合金薄帯を作製した。

[0085] 次いで、得られた合金薄帯を長さ20mm程度に切断した後、Ar雰囲気中、630～700°Cの温度で10分間保持する結晶化熱処理を施した。

[0086] [表1]

		合金組成(at%)							
		R		T		Q		Ti	M
		Nd	Pr	Fe	Co	B	C		
実施例	1	10	0	bal.	0	6	1	3	0
	2	9	0	bal.	8	5.5	0.5	1	0
	3	9	0	bal.	8	6	0	1	0
	4	8.25	0	bal.	8	5.5	0.5	1	0
	5	9	0	bal.	0	5.5	0.5	1	Cu0.25
	6	9	0	bal.	0	5.5	0.5	1	Ga0.5
	7	9	0	bal.	0	5.5	0.5	1	Nb0.5
	8	9	0	bal.	8	5.5	0.5	0.5	V0.5
	9	9	0	bal.	8	5.5	0.5	0.5	Zr0.5
	10	9	0	bal.	8	5	0.5	0.5	Nb0.5
	11	0	9	bal.	8	5.5	0.5	2	0
	12	4.12	4.13	bal.	8	5.5	0.5	3	0
	13	0	8.25	bal.	8	5.5	0.5	1	0
	14	7	0	bal.	0	7	0	1	0
	15	7.5	0	bal.	0	9	0	3	0
	16	8.5	0	bal.	0	7.5	0	1	0
	17	9.8	0	bal.	0	7.5	0	2	0
	18	9	0	bal.	3	8	0	2	0
	19	9	0	bal.	0	5.5	0.5	1	0
	20	9	0	bal.	8	6	0	0.5	0
	21	9	0	bal.	8	6	0	0.3	0
比較例	22	9	0	bal.	0	5	0	0	0
	23	8	0	bal.	0	5	0	0	0
	24	7	0	bal.	0	5	0	0	0
	25	8	0	bal.	0	6	0	0	0
	26	8	0	bal.	0	9	0	0	0
	27	7	0	bal.	0	7	0	0	0
	28	8	0	bal.	0	10	0	0	0
	29	7	0	bal.	0	7	0	0	Nb1
	30	7	0	bal.	0	7	0	0	Cr1

[0087] 热処理後の急冷合金薄帯の結晶相を粉末XRDで調査したところ、試料No. 22～30では、 $Nd_{2}Fe_{14}B$ 相と $\alpha$ −Fe相からなる金属組織であった。また、透過型電子顕微鏡を用いて微細金属組織を調査したところ、平均結晶粒径30nm～100nmの $Nd_{2}Fe_{14}B$ 相と $\alpha$ −Fe相が混在する微細金属であることを確認した。振動式磁力計を用いて測定した室温での結晶化热処理後の急冷合金薄帯の磁気特性を表2に示す。

[0088] [表2]

	磁気特性		
	$B_r$ (mT)	$H_{cJ}$ (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m <sup>3</sup> )
実 施 例	1	864	871
	2	1035	593
	3	1013	579
	4	1043	502
	5	986	574
	6	973	595
	7	983	630
	8	995	576
	9	982	551
	10	1023	569
	11	997	613
	12	1045	515
	13	1060	541
	14	1076	420
	15	910	434
	16	980	457
	17	950	783
	18	950	740
	19	992	581
	20	970	569
	21	945	534
比 較 例	22	902	418
	23	960	397
	24	946	265
	25	913	379
	26	917	405
	27	1035	353
	28	874	417
	29	1026	409
	30	1046	395

[0089] 表1および表2から明らかなように、本発明の実施例によれば、保磁力が400kA/m以上でありながら、残留磁束密度が0.9T以上となる優れた磁気特性が得られるのに対し、比較例では、残留磁束密度が0.9Tより低い。

### 産業上の利用可能性

[0090] 本発明によれば、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を有する鉄基希土類ナノコンポジット磁石が提供され、小型モータやセンサのように残留磁束密度の高い磁石が求められる電子機器に好適に利用される。

## 請求の範囲

[1] 組成式  $T_{100-x-y-z-n}^{ } Q_x R_y Ti_z M_n$  (TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率x、y、zおよびnが、それぞれ、

5 ≤ x ≤ 10原子%、

7 ≤ y ≤ 10原子%、

0. 1 ≤ z ≤ 5原子%、

0 ≤ n ≤ 10原子%

を満足する組成を有し、

磁気的に結合したナノコンポジット磁石構造を形成する  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相および  $\alpha - Fe$  相を含有し、

前記  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相の平均結晶粒径は20nm以上であり、前記  $\alpha - Fe$  相は前記  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相の厚さ20nm以下の粒界領域に存在し保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0. 9T以上の磁気特性を有する鉄基希土類ナノコンポジット磁石。

[2] 前記  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相の平均結晶粒径は30nm以上300nm以下、前記  $\alpha - Fe$  相の平均結晶粒径は1nm以上20nm以下である請求項1に記載の鉄基希土類ナノコンポジット磁石。

[3] 前記  $\alpha - Fe$  相の平均結晶粒径に対する  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相の平均結晶粒径の比率が2. 0以上である、請求項1に記載の鉄基希土類ナノコンポジット磁石。

[4] 前記  $\alpha - Fe$  相は、前記  $R_2 Fe_{14} B$  型化合物相の粒界三重点に位置している請求項1に記載の鉄基希土類ナノコンポジット磁石。

[5] 前記  $\alpha - Fe$  相の体積比率は全体の5%以上である、請求項1に記載の鉄基希土類ナノコンポジット磁石。

[6] 組成式  $T_{100-x-y-z-n}^{ } Q_x R_y Ti_z M_n$  (TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群

から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率x、y、zおよびnが、それぞれ、

$$5 \leq x \leq 10 \text{ 原子\%},$$

$$7 \leq y \leq 10 \text{ 原子\%},$$

$$0.1 \leq z \leq 5 \text{ 原子\%},$$

$$0 \leq n \leq 10 \text{ 原子\%}$$

を満足する組成を有し、

平均厚さが50  $\mu\text{m}$ 以上300  $\mu\text{m}$ 以下、

平均結晶粒径80nm以下の $\text{R}_{2}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物相を20体積%以上含む、

鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金。

- [7] 厚さの標準偏差  $\sigma$  が5  $\mu\text{m}$ 以下である、請求項6に記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金。
- [8] 結晶化層を少なくとも自由冷却側表面に有している、請求項7に記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金。
- [9] 請求項1に記載の鉄基希土類ナノコンポジット磁石の粉末を含むボンド磁石。
- [10] 組成式 $\text{T}_{100-x-y-z-n} \text{Q}_{x} \text{R}_{y} \text{Ti}_{z} \text{M}_{n}$  (TはFe、または、Feの一部がCoおよびNiからなる群から選択された1種以上の元素で置換された遷移金属元素、QはBおよびCからなる群から選択された少なくとも1種の元素、RはLaおよびCeを実質的に含まない1種以上の希土類元素、Mは、Al、Si、V、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Hf、Ta、W、Pt、Au、およびPbからなる群から選択された1種以上の金属元素)で表現され、組成比率x、y、zおよびnが、それぞれ、

5  $\leq x \leq 10$  原子%、

7  $\leq y \leq 10$  原子%、

0.1  $\leq z \leq 5$  原子%、

0  $\leq n \leq 10$  原子%

を満足する組成を有している合金の溶湯を用意する工程と、

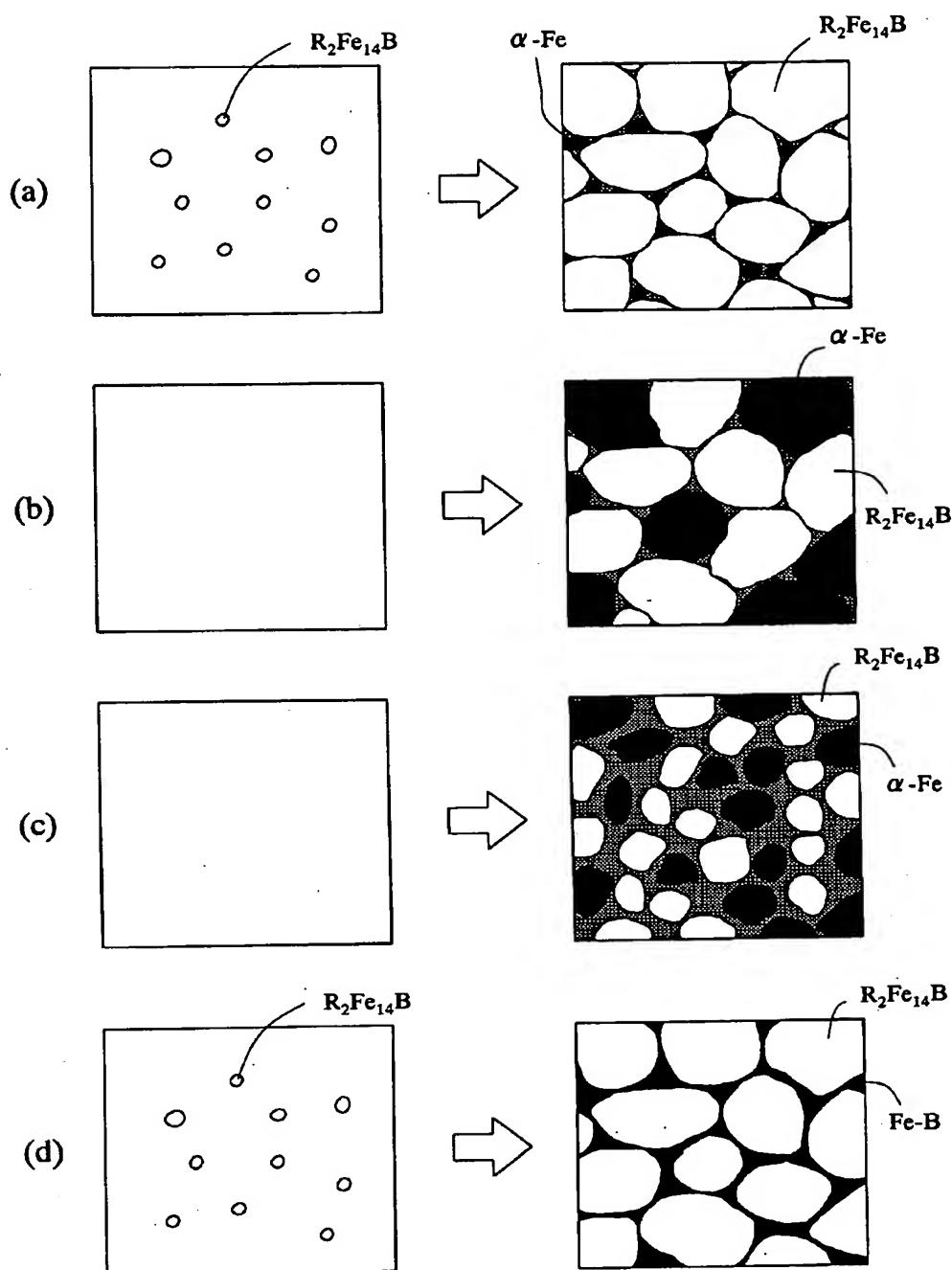
前記合金の溶湯を冷却して凝固させ、平均結晶粒径が80nm以下の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を20体積%以上含む急冷凝固合金を作製する急冷工程と、

前記急冷凝固合金を加熱することにより、磁気的に結合したナノコンポジット磁石構造を形成する $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相および $\alpha-Fe$ 相を含有し、前記 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径は20nm以上であり、前記 $\alpha-Fe$ 相は前記 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の厚さ20nm以下の粒界領域に存在し、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を有する鉄基希土類ナノコンポジット磁石を作製する工程と、

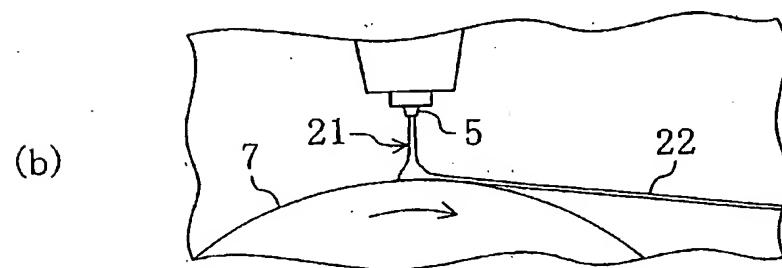
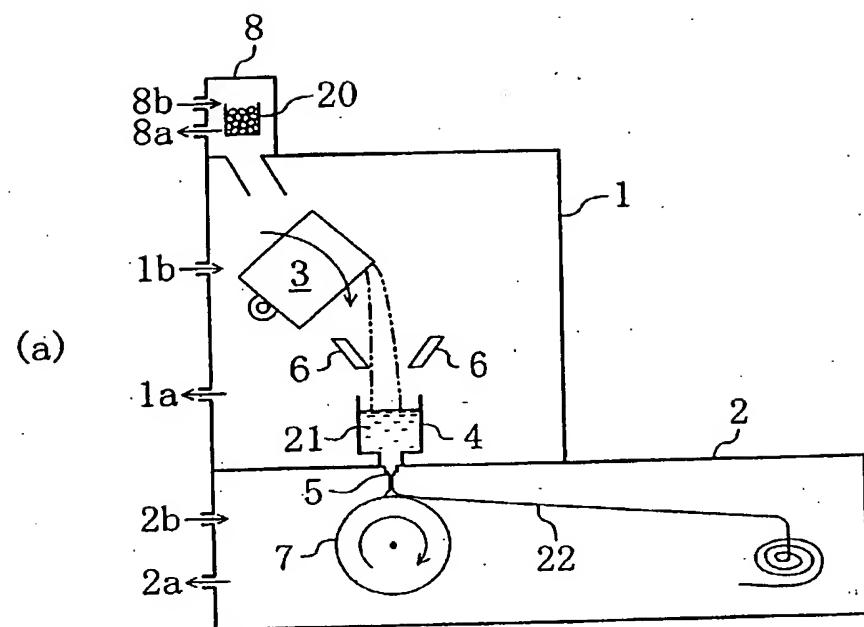
を含む鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の製造方法。

- [11] 前記 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相の平均結晶粒径は30nm以上300nm以下、前記 $\alpha-Fe$ 相の平均結晶粒径は1nm以上20nm以下である請求項10に記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の製造方法。
- [12] 前記急冷工程は、前記合金の溶湯を冷却して凝固させ、平均厚さ50 $\mu m$ 以上300 $\mu m$ 以下、厚さの標準偏差 $\sigma$ が5 $\mu m$ 以下の急冷凝固合金を形成する、請求項10に記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石の製造方法。
- [13] 請求項6から8のいずれかに記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石用急冷凝固合金を用意する工程と、  
前記急冷凝固合金を粉碎して、磁石粉末を作製する工程と、  
を包含する、鉄基希土類系ナノコンポジット磁石粉末の製造方法。
- [14] 前記急冷凝固合金の粉碎前または粉碎後に、前記急冷凝固合金を加熱することにより、平均結晶粒径が30nm以上300nm以下の $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相、および平均結晶粒径は1nm以上20nm以下の $\alpha-Fe$ 相を含有し、保磁力が400kA/m以上、残留磁束密度0.9T以上の磁気特性を発現させる、請求項13に記載の鉄基希土類系ナノコンポジット磁石粉末の製造方法。

[図1]



[☒2]



[図3]

